

# 基于上海光源扫描透射 X 射线显微术的 相干衍射成像模拟

谭兴兴 刘海岗 郭 智 吴衍青 许子健 王 勇 邵仁忠

(中国科学院上海应用物理研究所, 上海 201204)

**摘要** 扫描透射 X 射线显微术(STXM)是近年发展起来的基于第三代同步辐射光源的新型谱学显微技术。上海光源已在覆盖大多数重要元素吸收边的 250~2000 eV 光子能量段实现了 STXM 技术。基于上海光源 STXM 实验站装置模拟了一种新的成像方法:在充分利用原有装置基础上发展扫描相干衍射成像技术,不但可以有效提升实验站的空间分辨能力,而且实现起来也相对简单。针对上海光源软 X 射线实验站特点,讨论了实现扫描相干衍射成像的相干性条件,实验站各因素对成像分辨率的影响等,并针对具体的实验条件进行了模拟分析。模拟显示,通过发展该项技术可有效提高特定样品的空间分辨能力。

**关键词** X 射线光学;空间分辨率;重叠关联迭代引擎算法;扫描透射 X 射线显微术装置

**中图分类号** O436 **文献标识码** A **doi:** 10.3788/AOS201131.0418001

## Simulation of Coherent Diffraction Imaging Based on Scanning Transmission X-Ray Microscopy of Shanghai Synchrotron Radiation Facility

Tan Xingxing Liu Haigang Guo Zhi Wu Yanqing Xu Zijian Wang Yong Tai Renzhong

(Shanghai Synchrotron Radiation Facility, Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Science,  
Shanghai 201204, China)

**Abstract** Scanning transmission X-ray microscopy (STXM) is a recently developed spectroscopic microscopy based on the third generation synchrotron radiation facilities. Shanghai Synchrotron Radiation Facility (SSRF) has achieved STXM method, and the energy spans from 250 to 2000eV which covers most of the important elements' absorption edge. A new experimental method: by fully using the STXM equipment to develop scanning X-ray diffractive technology, not only can improve the spatial resolution, but also can be easy to implement. Considering the specialty of SSRF, the condition of coherence of SSRF for scanning X-ray diffractive technology and experimental condition for the image resolution of reconstruction are discussed. Finally, the method using specific parameters is simulated. Simulation shows that using this technology can efficiently improve the spatial resolution based on specific experimental conditions of specific specimen.

**Key words** X-ray optics; spatial resolution; ptychographical iterative engine algorithm; STXM equipment

**OCIS codes** 180.7460; 260.6048; 030.1640; 340.7460

## 1 引 言

扫描透射 X 射线显微术(STXM)<sup>[1]</sup>是近年在第三代同步辐射光源上发展起来的一种新型 X 射线显微术。与传统的显微术相比,STXM 同时具有

谱学分辨和空间显微的功能。X 射线相干衍射成像(CXDI)是近些年来快速发展的另一种无透镜显微方法<sup>[2]</sup>:当一束相干 X 光照射到样品上,样品结构对光波的波前调制,通过对探测这些光学信号并进

**收稿日期:** 2010-09-21; **收到修改稿日期:** 2010-11-22

**基金项目:** 中国科学院知识创新工程重要方向性项目(KJCX2-YW-N38)和上海市基础研究重点项目(08JC1422600)资助课题。

**作者简介:** 谭兴兴(1985—),男,硕士研究生,主要从事相干衍射成像算法方面的研究。E-mail: tanxingxing@sinap.an.cn

**导师简介:** 邵仁忠(1967—),男,博士,研究员,主要从事软 X 射线方法学方面的研究。E-mail: tairenzhong@sinap.ac.cn (通信联系人)

行运算处理,就可以得到样品的结构信息。扫描相干 X 射线衍射成像<sup>[3]</sup> (SXDM)是将 STXM 技术与 CXDI 技术相结合的一种新型成像实验方法。该方法的显著优点在于可以进行大尺寸样品结构的高分辨率显微成像,并且未来可能通过发展三维 SXDM 技术<sup>[4]</sup>实现复杂材料和生物样品的三维元素谱学分辨和空间分辨成像。

目前,上海光源首批建设线站已经实现了 STXM 功能并对用户开放。该实验站的谱学研究范围为 250~2000 eV,可以覆盖大多数重要元素的吸收边及水窗,对生物体和材料研究具有重要价值<sup>[1]</sup>。由于当前 SXDM 技术发展主要在硬 X 射线波段,而在软 X 射线波段的研究却相对较少。于是在上海光源 STXM 实验站基础上发展软 X 射线 SXDM 技术,对技术本身和应用研究都有重要的意义。

上海光源电子发射度仅为 3.9 nmrad,在软 X 射线波段具有良好的空间相干性和时间相干性<sup>[5]</sup>。通过适当改进 STXM 实验站,在现有装置后添加 CCD 采集相干衍射数据,就可以发展软 X 射线 SXDM 技术。本文基于上海光源软 X 射线谱学显微实验站分析了实现 SXDM 的条件,实验站各因素对扫描相干衍射重建的影响,并对特定条件下的重建进行了分析。

## 2 基本装置原理及理论

### 2.1 上海光源 STXM 装置及基本原理

STXM 是近年同步辐射装置上发展出的一种新型成像技术,利用该技术可实现样品的二维形貌成像和特定元素成像。上海光源 STXM 的工作原理如图 1 所示。被测样品置于波带片(zone plate)的焦点处,探测器(CCD/PMT detector)放置在样品后,通过探测样品在焦点平面处精细移动并测量其透过光束的强度,从而实现样品的形态或谱学成像。上海光源软 X 射线 STXM 装置的光子能量段涵盖范围为 250~2000 eV;在氩边附近的谱学分辨率超

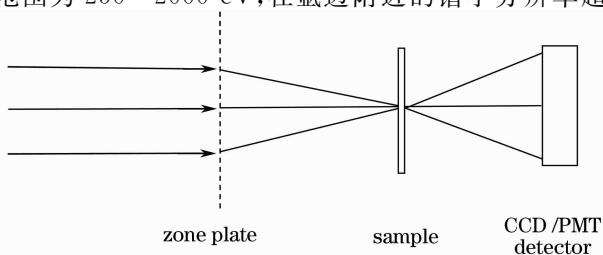


图 1 STXM 的工作原理图

Fig. 1 STXM principle illustration

过 10000;在光子能量为 1840 eV 且位移步长为 15 nm 时空间分辨率可达到 30 nm 以下<sup>[6]</sup>;且未来可根据需求发展三维显微 CT 技术<sup>[7]</sup>。

一般来说,STXM 技术的空间分辨能力受到聚焦光斑大小(或者说波带片最外环宽度)的限制。要实现更高的空间分辨能力就要对波带片的加工工艺提出更为苛刻的要求,而这几乎是难以实现的。同时,样品不一定能够保证完全处于焦点位置,也会影响成像分辨率。然而,近年出现的 SXDM 实验技术却为进一步提高样品的空间分辨能力提出了一种新的思路。SXDM 实验技术的基本思想是:当入射的 X 射线具有高度的相干性时,经过样品后的光波波前发生调制。调制后 X 射线经过衍射叠加,会形成衍射花样。利用 CCD 采集衍射花样的强度分布,采用重叠关联迭代引擎算法<sup>[8]</sup>进行重建就可以得到聚焦或焦点附近处的样品结构信息。SXDM 相当于将 STXM 焦点处的样品结构信息进一步搜集处理,从而达到更进一步提高分辨能力的目的。

### 2.2 重叠关联迭代引擎算法原理

J. M. Rodenburg 等<sup>[8]</sup>在前人基础上不断发展重叠关联迭代引擎算法,成为发展 SDXM 技术的基础。原理如图 2 所示。探针扫描沿横向或纵向扫描时每次位移的步长相同,且步长小于光斑的直径。于是,光探针所在位置与已经扫描过的样品区域存在重叠。该算法的核心思想是:若扫描时光探针扫描区域存在重叠,那么样品所在重叠位置处的先验信息可由上次迭代重建的结果给出;通过利用先验信息迭代可保证下次重建过程的快速收敛。

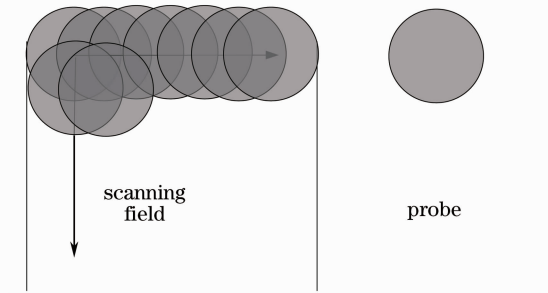


图 2 重叠关联迭代引擎算法的基本原理

Fig. 2 Basic principle of ptychographical iterative engine algorithm

本文采用最新的扫描相干衍射成像算法<sup>[9]</sup>,算法的流程结构如图 3 所示。设入射光的波函数为  $O_j(r)$ ,样品对光波的调制函数为  $T(r)$ ,其中  $r$  为样品空间坐标,  $R$  为探针光斑相对样品位置,  $j$  为重建时的迭代次数,  $N$  为控制迭代的变量,这样入射光波被样品调制后的

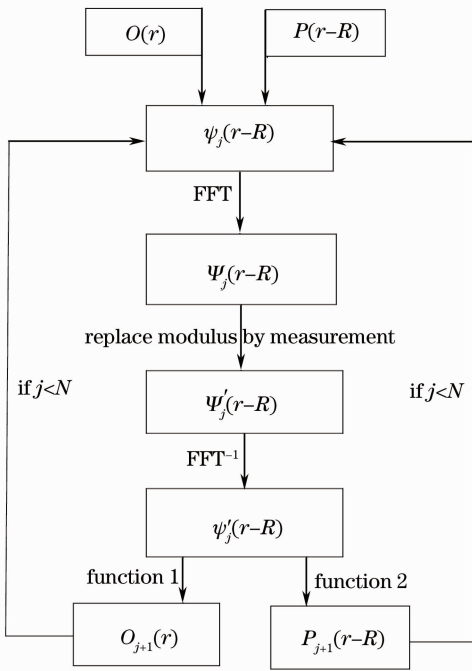


图 3 重叠关联迭代引擎算法的流程

Fig. 3 Stream of ptychographical iterative engine algorithm

波函数表达式为： $\psi_j(r) = O(r)_j P(r-R)_j$ 。

将  $O_j(r)$ ，附初值并在迭代算法进行运算。在新一轮迭代开始前，对入射光的波前表达式和样品调制函数的表达式修改为

$$O_{j+1}(r) = O_j(r) + \alpha \frac{P_j^*(r-R)}{|P_j(r-R)|_{\max}^2} \times [\psi'_j(r) - \psi_j(r)], \quad (1)$$

$$P_{j+1}(r-R) = P_j(r-R) + \beta \frac{O_j^*(r+R)}{|O_j(r+R)|_{\max}^2} \times [\psi'_j(r) - \psi_j(r)], \quad (2)$$

式中令  $\alpha=1, \beta=1$ 。可以看出，每经过新一轮的迭代，正确的样品结构信息在光斑处得到加强；同时，入射到样品上的光斑信息也得到了结构信息的校正。

### 3 上海光源软 X 射线 SXDM 方法

虽然 SXDM 有诸多优点，但也存在不少困难。首先，SXDM 对光源的时间和空间相干性要求很高。此外，SXDM 的算法求解要求较高，直到近些年才发展出针对扫描式的相干衍射成像算法，需要结合具体情况分析算法的性能。目前，国外的 SXDM 技术研究主要集中在硬 X 射线波段，而针对软 X 射线的 SXDM 技术却少有报道。上海光源针对软 X 射线的 SXDM 实验技术进行了相应的研究和探索。

#### 3.1 相干性分析

上海光源储存环能量 3.5 GeV，电子束发射度

为 3.9 nmrad，是典型的第三代同步辐射光源。当储存环电子束流强度为 300 mA 时，水平方向及垂直方向的辐射源尺寸和发散角分别为  $\Sigma_x = 158 \mu\text{m}$ ， $\Sigma_y = 9.9 \mu\text{m}$ ， $\Sigma'_x = 33 \mu\text{rad}$ ， $\Sigma'_y = 33 \mu\text{rad}$ 。软 X 射线谱学显微线站采用波荡器作为插入件，其中波荡器的磁极长度为 10 m。因此可计算波荡器在不同波长时的光源点大小及发散角大小。以波长 1 nm 的软 X 光为例，从波荡器出来的同步辐射光水平及垂直方向上的光源尺寸和发散角分别为  $\Sigma_x = 158.2 \mu\text{m}$ ， $\Sigma_y = 12.71 \mu\text{m}$ ， $\Sigma'_x = 34.48 \mu\text{rad}$ ， $\Sigma'_y = 10.75 \mu\text{rad}$ 。由空间相干性的计算关系  $2\pi\Sigma_x\Sigma'_x = \lambda/2$  可知<sup>[10]</sup>，软 X 光在垂直方向上完全满足相干条件。同时，通过控制出射狭缝的宽度可以获得水平方向满足相干条件的光子。

实验站的高能量分辨率还可以保证光波的单色性。相干衍射成像时间相干性需要满足  $\lambda\Delta\lambda = d_{\text{OA}}/d$ <sup>[11]</sup>；其中  $\lambda$  为波长， $d_{\text{OA}}$  为光探针尺寸， $d$  为分辨率极限。上海光源软 X 射线谱学显微线站的  $\lambda\Delta\lambda$  典型范围为 2000~10000<sup>[6]</sup>，若光探针尺寸为 30 nm，则  $d=0.015 \text{ nm}$ 。在进行数值模拟时我们确定模拟的最小分辨单位为 1 nm，可暂不考虑光源相干性对扫描相干衍射成像质量的影响<sup>[12]</sup>。

#### 3.2 数值模拟分析

模拟扫描相干衍射成像时，探针按特定步长扫描样品且在各位置停留时间相同。将探针在各位置对应的衍射强度数值代入算法进行运算，得到重建结果。模拟部分首先考虑各因素对算法重建的影响，然后对特定条件下的样品重建图像进行分析。

##### 3.2.1 模拟参数

上海光源软 X 射线谱学显微光束线站已经实现 30 nm 的空间分辨率，根据波带片聚焦的性质，焦点处的光斑可认为是球面波。实验中样品不能完全保证位于焦点处，将入射到样品上的光斑取做直径为 50 nm 的光斑进行模拟。根据上海光源实验站条件，确定扫描样品移动的步长  $d=15 \text{ nm}$ 。模拟选用 CCD 像素阵列为 1340 pixel×1300 pixel（即 CCD 尺寸为 26.8 mm×26 mm），其中每个像素的大小为 20  $\mu\text{m}$ ×20  $\mu\text{m}$ ，衍射光强最大值在 CCD 中心附近。对实验数据进行预处理，将 CCD 上的像素点进行间隔采样，选择采样数目为 256×256，并令光强的最大值对应采样中心。同时，选取入射光斑波长为 1 nm（光子能量为 1240 eV），CCD 到样品的距离为 2.05 cm。此时，可根据快速傅里叶变换关系确定模拟的理论最小分辨单位为 1 nm<sup>[13]</sup>。

### 3.2.2 非理想因素对算法重建的影响

在相干衍射成像中会有一些受到其它非理想因素的影响<sup>[14]</sup>,这些因素与具体的实验环境,样品状况相关。模拟部分考虑了光斑分布偏差、CCD 噪声以及探针扫描移动时的位移误差对相干衍射重建的影响。对于样品,我们仅认为产生光波的振幅调制,不产生相位调制。

扫描相干衍射求解中往往需要知道入射光斑的波前,也就是光探针函数。与硬 X 射线聚焦情况不同,由于软 X 射线波带片聚焦后光斑极小,所以精确求解聚焦光斑处的波前存在一定难度。针对该问题,可首先根据 STXM 的空间分辨率(波带片最外环宽度)确定光斑尺寸的大致情况,然后利用理想光斑取代实验中的真实光斑迭代输入 J. M. Rodenburg 等<sup>[8]</sup>提出的最新算法进行求解。使用该方法进行求解时,需要考虑迭代输入的理想光斑和真实光斑的分布偏差对重建结果的影响。为便于分析,可通过在理论计算的光斑区域加入高斯分布噪声来表征实验中的光斑分布,模拟不同偏差情况下

重建的效果。

此外,在实验过程中 CCD 采集数据存在着噪声。噪声的存在主要有两方面原因:1)光源相干性的影响,非相干光会在 CCD 中产生杂散信号<sup>[15]</sup>;2) CCD 自身的热背景噪声。对于第一种情况我们在前面进行了相干性分析,暂不考虑该因素对重建的影响。对于第二种情况,可假设 CCD 上的随机噪声是高斯分布的,分析该噪声对重建的影响。另外,样品在移动时会存在一定的误差。这种误差主要是压电陶瓷的控制误差引起的。此时,CCD 采集数据不能严格保证 15 nm 步长的实验条件,需要考虑这种偏差时对重建的影响。

图 4 是针对以上 3 种情况进行测试的结果。在进行重建的时候,进行了 3 轮重建过程,每轮进行了 5 次迭代运算。为了说明重建效果的一般性,采用了国际标准测试图作为被测样品[如图 4(a)所示]。同时,样品重建效果可用重建区域内与原图的灰度均方差(MSE)予以表示。MSE 表征重建图像与原图的接近程度,MSE 越大,失真就越大。

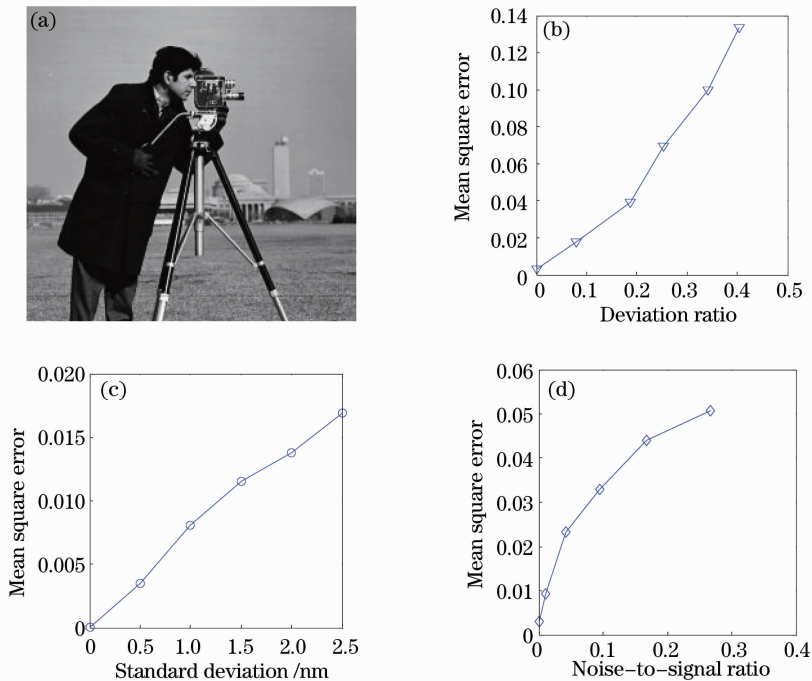


图 4 各因素对重建图像的影响

Fig. 4 Influence of the various factors on image construction

图 4(b)是光斑信息偏差对 MSE 重建影响的测试结果。实验中光斑相对理论光斑的偏差用相对偏差率(DR)来表示。定义相对偏差率为理论光斑与实验光斑偏差的绝对值相对于理论光斑绝对值的比率。可以看到,随着理论光斑与实验光斑的偏差增大,重建图像的 MSE 也随之增大即图像效果越来越

越差,理论与实验中光斑信息的偏差 DR 相对于重建图像的 MSE 接近于线性。同时可以注意到,相对于理论光斑与实验光斑的偏差,重建样品图像的 MSE 相对较小。这是由于算法本身保证光斑信息不断修正,从而保证了样品图像重建质量。

图 4(c)是样品位移偏差对 MSE 重建影响的测



试结果。样品移动时候的误差可用标准偏差予以表示。分别测试样品位移误差在 0~2.5 nm 情况下重建图像的 MSE。可以看出随着位移偏差的增大,重建图像的质量在下降,且位移的标准偏差与重建图像的 MSE 呈线性关系。图 4(d) 是 CCD 噪声对 MSE 重建影响的测试结果。在不考虑非相干光的影响时,CCD 噪声的来源主要是热噪声,可采用随机分布的高斯噪声进行模拟。图中的横坐标为噪声功率相对于 CCD 采集信号功率的比值(NSR),分别测试了在噪声功率占信号功率 0~30% 时重建图像的 MSE。可以看出随着 CCD 噪声功率相对于信号功率的增加,重建图像的质量在下降。

从以上的分析测试来看,以上 3 种因素分别与图像重建质量存在负相关关系。即随着这些因素增加,图像重建质量会变差。同时,由于这 3 个因素是

互不相关的,因此在其中两个保持不变的情况下增加另外一个会引起重建图像质量的下降。于是,可以在确定的光斑偏差,样品移动误差,以及 CCD 噪声情况下考察某个样品的重建效果。若重建后的图像能达到一定的空间分辨率,则在更为苛刻的条件下能够实现不低于以上条件重建的空间分辨率。

### 3.2.3 重建分辨能力分析

为分析扫描相干衍射重建后的效果,选用一个特定的样品进行数值模拟分析[如图 5(a)所示]。该样品仅对光振幅产生调制,对光相位不产生影响,其中白色部分对光的振幅透射率为 0.7,灰色部分对光的振幅透射率为 0.4。模拟时,选取理论光斑与实验光斑的偏差 DR 为 0.519,样品移动的位移标准差为 1 nm,CCD 上的噪声功率相对信号功率为 4.258。

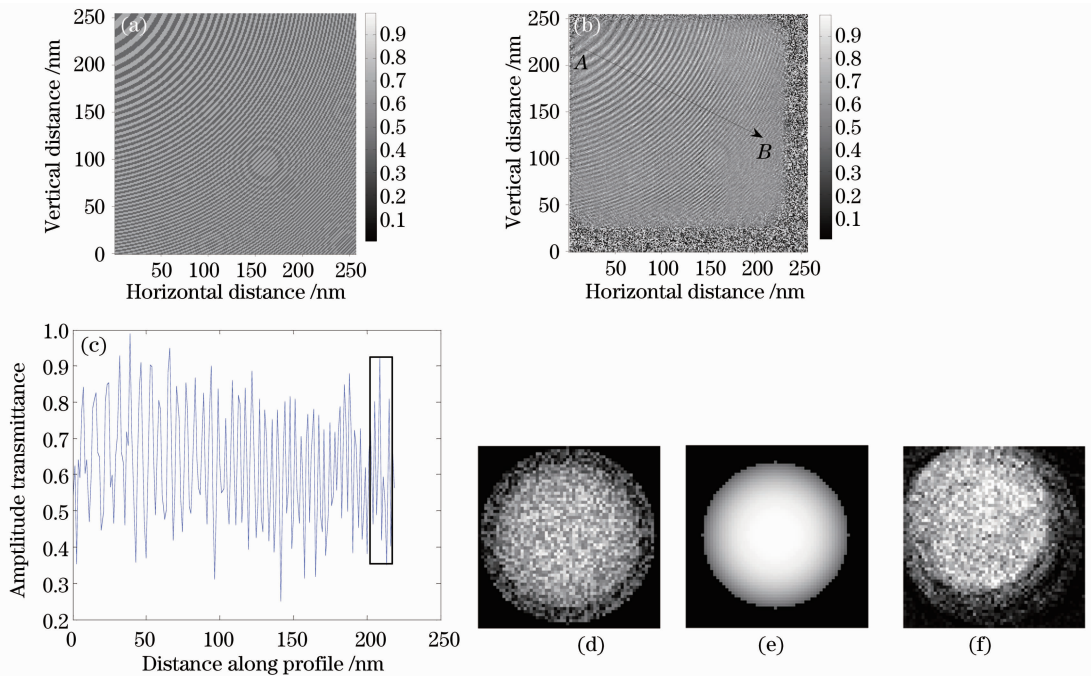


图 5 针对特定样品的扫描相干衍射成像模拟结果

Fig. 5 Simulation result of SXDM based on specific sample

图 5(b) 为重建后的样品图像,可以看到重建区域与原图相比分辨率有所下降,但是仍然能够清晰地看到其中的细节信息。图 5(c) 是从重建图中 A, B 两点之间连线处取出的强度分布。从图 5(c) 宽 17 nm 黑方框内可以看到有 5 个尖峰。这对应了图 5(b) 中的 5 条白色条纹。因此,可以估算出条纹的宽度约为 3~5 nm。然而,重建后的强度分布相对于真实强度分布存在一定误差,强度的重建后的范围为 0.4~0.9。

图 5(d) 是模拟中的实验光斑,图 5(e) 为进行迭代输入的理论光斑,图 5(f) 为重建后的光斑形状。从三个光斑图的对比可以看出,实验光斑与理论光斑还是有很大差别的。经过迭代运算后,理论光斑得到了一定程度的修正。重建光斑与实验光斑从图中看来有一定的漂移,但这并不受影响。当重建图位置相对于样品图像存在漂移时,对应的光斑图像也会存在漂移。整体来看,重建后的光斑和实验光斑形状还是十分接近的。

## 4 结 论

进行了软 X 射线扫描相干衍射成像的数字模拟,为上海光源发展扫描相干衍射提供相应的实验理论支持。通过对上海光源 STXM 实验站相干性及装置特点的分析,说明了实现软 X 射线 SXDM 的技术可能。数值模拟考虑了理想光斑偏差,样品位移误差以及 CCD 噪声的影响。模拟显示:特定条件下上海光源软 X 射线谱学显微实验站采用 SDXM 方法可以得到更高的样品空间分辨率,理想样品在一定条件下空间分辨率可达到 3~5 nm。该方法不仅使样品结构得到了重建,而且入射光斑也得到了一定程度的恢复。然而,由于光斑分布偏差,样品位移偏差以及 CCD 噪声等因素影响,重建样品调制光振幅准确率还有待进一步提升。未来将对扫描相干衍射实验,元素分辨成像展开更进一步的研究和讨论,从而为纳米级的三维元素谱学分辨和空间分辨成像方法打下基础。

## 参 考 文 献

- 1 J. Kirz, C. Jacobsen, M. Howells *et al.*. Soft X-ray microscopes and their biological applications [J]. *Quarterly Reviews of Biophysics*, 2009, **28**(1):33~130
- 2 J. Miao, P. Charalambous, J. Kirz *et al.*. Extending the methodology of X-ray crystallography to allow imaging of micrometre-sized non-crystalline specimens[J]. *Nature*, 1999, **400**(6742): 342~344
- 3 P. Thibault, M. Dierolf, A. Menzel *et al.*. High-resolution scanning X-ray diffraction microscopy [J]. *Science*, 2008, **321**(5887): 379~381
- 4 Duan Lian, He Yonghong, Zhu Rui *et al.*. Development of a spectrum domain 3D optical coherence tomography system [J]. *Chinese J. Lasers*, 2009, **36**(10): 2528~2533  
段 炼, 何永红, 朱 锐 等. 三维谱域光学相干层析成像系统的研制[J]. *中国激光*, 2009, **36**(10): 2528~2533
- 5 Gong Zhihua, Chen Min, Wang Yong *et al.*. Measurement of monochromator's angle repeatability by phase plate diffraction collimation method [J]. *Acta Optica Sinica*, 2009, **29**(10): 2813~2817  
巩志华, 陈 敏, 王 勇 等. 单色仪转角重复精度的相位板衍射准直方法测量[J]. *光学学报*, 2009, **29**(10): 2813~2817
- 6 Xue Chaofan, Yong Wang, Zhi Guo *et al.*. High-performance soft X-ray spectromicroscopy beamline at SSRF[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2010, **81**(10): 103502
- 7 Yang Min, Liu Jinghua, Li Baolei *et al.*. Measurement method of X-ray focus projection coordinates of three-dimensional micro-computerized tomography scanning system [J]. *Acta Optica Sinica*, 2009, **29**(5): 1275~1280  
杨 民, 刘静华, 李保磊 等. 三维显微 CT 扫描系统的 X 射线源焦点投影坐标测量方法 [J]. *光学学报*, 2009, **29**(5): 1275~1280
- 8 J. Rodenburg, H. Faulkner. A phase retrieval algorithm for shifting illumination [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2004, **85**(20): 4795~4797
- 9 A. Maiden, J. Rodenburg. An improved ptychographical phase retrieval algorithm for diffractive imaging [J]. *Ultramicroscopy*, 2009, **109**(10): 1256~1262
- 10 Friso van der Veen, Franz Pfeiffer. Coherent X-ray scattering [J]. *J. Physics Condensed Matter*, 2004, **16**(28): 5003~5030
- 11 Miao Jianwei. Phase retrieval of diffraction patterns from noncrystalline samples using the oversampling method [J]. *Phys. Rev. B*, 2003, **67**(17): 174104
- 12 J. C. H. Spencea, U. Weierstalla, M. Howells. Coherence and sampling requirements for diffractive imaging [J]. *Ultramicroscopy*, 2004, **101**(2-4): 149~152
- 13 Li Junchang, Xiong Bingheng. Information Optics Theory and Calculation [M]. The Frist Edition, Beijing: Science Press, 2009. 98~101  
李俊昌, 熊秉衡. 信息光学理论与计算 [M]. 第一版, 北京: 科学出版社, 2009. 98~101
- 14 S. Marchesini, H. N. Chapman, S. P. Hau-Riege. Coherent X-ray diffractive imaging, applications and limitations [J]. *Opt. Express*, 2003, **11**(19): 2344~2353
- 15 Huang Xiaojing, Miao Huijie, Steinbrener Jan *et al.*. Signal-to-noise and radiation exposure considerations in conventional and diffraction X-ray microscopy [J]. *Opt. Express*, 2009, **17**(16): 13542~13553